

<p>95-237180/31 C02  MITSUI TOATSU CHEM INC  93.11.24 93JP-293004 (95.06.06) C07D 277/56, A01N 43/78  New N-substd. 5-thiazole-carboxamide derivs. - used as herbicides, prepd. from corresp. acid halide and 2-amino-biphenyl.  C95-109050</p>	<p>MITK 93.11.24  *JP 07145156-A</p>
<p>N-(2-Phenylphenyl)-4-trifluoromethyl-thiazole- 5-carboxamide derivs. of formula (I) are new.</p> <div data-bbox="743 1249 927 1745"> <p>(I)</p> </div> <p>R=H or CH<sub>3</sub>.</p> <p><u>USE</u>  (I) are fungicides, effective against e.g. Botrytis cinerea, Sphaerotheca fuliginea, Erysiphe graminis, Sphaerotheca humuli,</p>	<p>C(7-F1, 14-A6) .2</p> <p>Uncinula necator, Podosphaera leucotricha or Gibberella zeae.</p> <p><u>PREPARATION</u>  (I) are prepd. by reacting thiazolecarboxylic halides of formula (II) with 2-aminobiphenyl in a melt or in a solvent.</p> <div data-bbox="792 310 971 989"> <p>(II)</p> <p>2-aminobiphenyl → (I)</p> </div> <p>X=halogen.</p> <p>JP 07145156-A +</p>

**EXAMPLE**

A suspension of 4g 2-methyl-4-trifluoromethylthiazole-5-carboxylic acid in 50 ml toluene was treated with 4.74 g PCl<sub>5</sub>, refluxed for 3 hrs. and evapd. 30 ml THF tetrahydrofuran and 1.8g pyridine were added, then 3.56g 2-aminobiphenyl was added while stirring at room temp. The mixt. was stirred for 2 hrs., poured into water, washed, dried and conc. The prod. was purified to give 5.3g (73%) of N-(2-phenylphenyl)-2- methyl-4-trifluoromethylthiazole-5-carboxamide, m.pt. 121.6-122.8 °C. N-(2-Phenylphenyl)-4-trifluoromethylthiazole-5-carboxamide was also prepd. (AB)  
(7pp0078Dwg No.0/0)

JP 07145156-A

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平7-145156

(43) 公開日 平成7年(1995)6月6日

(51) Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 7 D 277/56				
A 0 1 N 43/78	B			
	Z			

審査請求 未請求 請求項の数 3 O L (全 7 頁)

(21) 出願番号 特願平5-293004

(22) 出願日 平成5年(1993)11月24日

(71) 出願人 000003126

三井東圧化学株式会社

東京都千代田区霞が関三丁目2番5号

(72) 発明者 吉川 幸宏

千葉県茂原市東郷1144番地 三井東圧化学株式会社内

(72) 発明者 川島 秀雄

千葉県茂原市東郷1144番地 三井東圧化学株式会社内

(72) 発明者 富谷 完治

千葉県茂原市東郷1144番地 三井東圧化学株式会社内

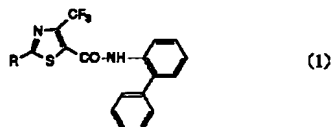
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 チアゾールカルボン酸アミド誘導体およびこれを有効成分とする農薬用殺菌剤

(57) 【要約】

【目的】 本発明は、優れた殺菌効果を示すと共に、作物に対しても安全な農薬用殺菌剤を提供することを目的とする。

【構成】 一般式 (1)



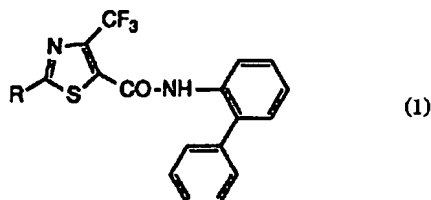
(式中、Rは水素原子またはメチル基を表す) で表されるチアゾールカルボン酸アミド誘導体、それを有効成分として含有する殺菌剤およびそれを用いた植物病害防除方法。

1

【特許請求の範囲】

【請求項1】 一般式(1)(化1)

【化1】



(式中、Rは水素原子またはメチル基を表す)で表され 10  
るチアゾールカルボン酸アミド誘導体。

【請求項2】 請求項1に記載の一般式(1)の化合物  
を有効成分として含有する農園芸用殺菌剤。

【請求項3】 請求項1に記載の一般式(1)化合物を  
植物病原菌類またはその生息場所に施用することと特徴  
とする植物病害の防除方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、新規なチアゾールカル  
ボン酸アミド誘導体およびこれを有効成分として含有す 20  
る農園芸用殺菌剤に関する。

【0002】

【従来の技術】従来から極めて多岐にわたるカルボン酸  
アミドが除草剤、殺菌剤として生理活性を示すことが広  
く知られており、中でも安息香酸アミド、あるいはヘテ  
ロ環カルボン酸アミドについては特許のみでなく、殺菌  
剤として市販されている薬剤も多い。例えば、安息香酸  
アミドとして3'-イソプロピルオキシ-2-メチルベン  
ズアニリド、あるいは $\alpha$ 、 $\alpha$ 、 $\alpha$ -トリフルオロ-  
3'-イソプロピルオキシ-2-トルアニリドはイネ紋 30  
枯病、ムギのさび病等に対する殺菌剤として市販されて  
いる。また、ヘテロ環カルボン酸アミドとしては5, 6  
-ジヒドロ-2-メチル-1, 4-オキサチン-3-  
カルボキシアニリド-4, 4-ジオキシドはキク白さび  
病、3, 4-ジヒドロ-6-メチル-2H-ピラン-5-  
カルボキシアニリドはムギのさび病に対する殺菌剤と  
して市販されている。

【0003】さらに、Pestic. Sci., 38,  
1~7(1993)には、チアゾールカルボン酸アミド  
類がコハク酸脱水素酵素の働きを阻害することにより、 40  
Rhizoctonia菌に対して活性を有すること、  
Aust. J. Chem., 36, 135~147(1  
983)には、ピラゾールカルボン酸アミド類が同様に  
Rhizoctonia菌に対して活性を有することが  
記載されている。

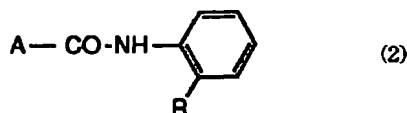
【0004】また、特開平5-221994号公報に  
は、ニコチン酸アニリド類をはじめ各種ヘテロ環カルボ  
ン酸アミド類が記載されており、その中に、下記一般  
式(2)(化2)に示したチアゾールカルボン酸アミド  
誘導体もBotrytis菌に効果を有することが記載 50

2

されている。

【0005】

【化2】



【0006】(式中、Aは2-および4-位において水  
素、メチル、塩素、トリフルオロメチルにより置換され  
ているチアゾール-5-イル、2-および5-位におい  
て水素、メチル、塩素、トリフルオロメチルにより置換  
されているチアゾール-4-イルを意味し、Rが場合に  
よりハロゲンで置換されていてもよいC<sub>2</sub>~C<sub>12</sub>アルキ  
ル、場合によりハロゲンで置換されていてもよいC<sub>3</sub>~  
C<sub>12</sub>アルケニル、C<sub>3</sub>~C<sub>6</sub>アルキニル、場合によりハロ  
ゲンで置換されていてもよいC<sub>2</sub>~C<sub>12</sub>アルコキシ、場  
合によりハロゲンで置換されていてもよいC<sub>3</sub>~C<sub>12</sub>ア  
ルケニルオキシ、C<sub>3</sub>~C<sub>12</sub>アルキニルオキシ、場合に  
よりC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキルで置換されていてもよいC<sub>4</sub>~C<sub>6</sub>  
シクロアルキル、場合によりC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキルで置換さ  
れていてもよいC<sub>4</sub>~C<sub>6</sub>シクロアルケニル、場合により  
C<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキルで置換されていてもよいC<sub>5</sub>~C<sub>6</sub>シク  
ロアルキルオキシ、場合によりC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキルで置換  
されていてもよいC<sub>5</sub>~C<sub>6</sub>シクロアルケニルオキシ、場  
合によりC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキル、C<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルコキシ、C<sub>1</sub>  
~C<sub>4</sub>アルキルチオ、ハロゲンで置換されていてもよい  
フェニルをそれぞれ意味する)

【0007】しかしながら、この発明の実施例に具体的  
に開示されたチアゾール類で殺菌活性が示されているの  
は、Aが4-位にトリフルオロメチル基により置換され  
たチアゾール-5-イルで、かつRがアルキル基の場合  
に限られている。また、この公報にはRがフェニル基、  
フッ素置換フェニル基の場合も表中に記載されている  
が、実施例の示されているのは、Aが4-位においてメ  
チル基により置換されているチアゾール-5-イル基  
で、かつRがフェニル基の場合の1例にとどまる。しか  
も、この例に関しても殺菌活性は何ら示されていない。  
本発明者らは実施例に具体的に開示された化合物および  
表中の化合物について殺菌活性を試験したが、防除効果  
は低く、実用的なものではなかった。

【0008】

【発明が解決しようとする課題】本発明の課題は、従来  
技術と比較して、優れた殺菌効果を示すと共に、作物に  
対しても安全な農園芸用殺菌剤を提供することにある。

【0009】

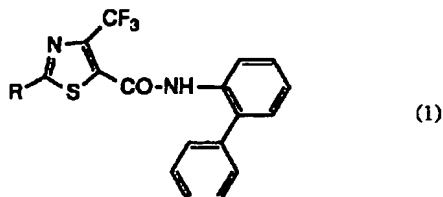
【課題を解決するための手段および作用】本発明者らは  
前記課題を解決するため、チアゾールカルボン酸アミド  
誘導体について更に研究を進めた。その結果、チアゾ  
ール環の4-位にトリフルオロメチル基を有し、アミン部  
が2-アミノビフェニルである、新規なチアゾールカル

3

ボン酸アミド誘導体が、前述の特開平 5-221994 号公報に記載された内容からは全く予測することのできない新しい殺菌効果を示すことを見出し、本発明を完成した。すなわち、本発明は、一般式 (1) (化 3)

【0010】

【化 3】



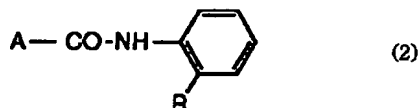
【0011】(式中、R は水素原子またはメチル基を示す) で表されるチアゾールカルボン酸アミド誘導体およびこれを有効成分として含有する農薬用殺菌剤である。

【0012】本発明化合物はチアゾール環の 4-位にトリフルオロメチル基を導入し、かつアミン部に 2-アミノビフェニルを導入したところに特徴がある。一方、特開平 5-221994 号公報には、下記一般式 (2)

(化 4) に示されたチアゾールカルボン酸アミド誘導体が *Botrytis* 菌に効果を有することが記載されている。

【0013】

【化 4】



【0014】(式中、A は 2-および 4-位において水素、メチル、塩素、トリフルオロメチルにより置換されているチアゾール-5-イル、2-および 5-位において水素、メチル、塩素、トリフルオロメチルにより置換されているチアゾール-4-イルを意味し、R が場合によりハロゲンで置換されていてもよい  $C_2 \sim C_{12}$  アルキル、場合によりハロゲンで置換されていてもよい  $C_3 \sim C_{12}$  アルケニル、 $C_3 \sim C_6$  アルキニル、場合によりハロゲンで置換されていてもよい  $C_2 \sim C_{12}$  アルコキシ、場合によりハロゲンで置換されていてもよい  $C_3 \sim C_{12}$  アルケニルオキシ、 $C_3 \sim C_{12}$  アルキニルオキシ、場合により  $C_1 \sim C_4$  アルキルで置換されていてもよい  $C_4 \sim C_6$  \*

(3)

4

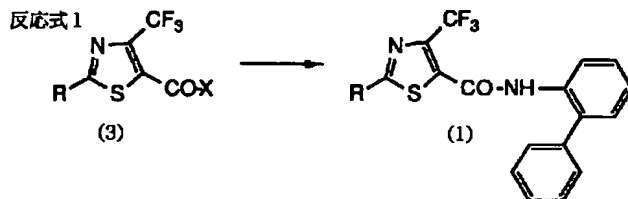
\*シクロアルキル、場合により  $C_1 \sim C_4$  アルキルで置換されていてもよい  $C_4 \sim C_6$  シクロアルケニル、場合により  $C_1 \sim C_4$  アルキルで置換されていてもよい  $C_5 \sim C_6$  シクロアルキルオキシ、場合により  $C_1 \sim C_4$  アルキルで置換されていてもよい  $C_5 \sim C_6$  シクロアルケニルオキシ、場合により  $C_1 \sim C_4$  アルキル、 $C_1 \sim C_4$  アルコキシ、 $C_1 \sim C_4$  アルキルチオ、ハロゲンで置換されていてもよいフェニルをそれぞれ意味する)

【0015】すなわち、特開平 5-221, 994 号公報は上位概念として本発明の化合物を含有する。しかしながら、この公報は極めて広い範囲の化合物を請求しているが、実施例化合物は限られている。例えば、前記一般式 (1) で示された化合物に関して、殺菌効果の示されているのは、A が 4-位においてトリフルオロメチル基で置換されているチアゾール-5-イルで、かつ R がアルキル基の場合に限られる。また、(a) A が 4-位においてトリフルオロメチル基で置換されているチアゾール-5-イルで、かつ R がフッ素置換フェニル基の場合、および (b) A が 4-位においてメチル基により置換されているチアゾール-5-イルで、かつ R がフェニル基の場合が表中に記載されているが、実施例の示されているのは (b) の 1 例にとどまる。しかも、この例に関しても殺菌活性は何ら示されていない。本発明者らは、実施例の開示された化合物さらには表中の化合物についても殺菌活性を試験したが、防除効果は低く、実用的なものではなかった。

【0016】従って、本発明化合物は、チアゾール-5-カルボン酸アミドにおいて、チアゾール環の 4-位にトリフルオロメチル基を導入し、かつアミン部として 2-アミノビフェニルを導入したところに特徴がある。これらの特定の基を導入した意義は大きく、本発明の化合物は前記先行技術、特開平 5-221, 994 号公報に記載された化合物がほとんど防除効果を示さないか、極めて弱い効果しか示さない植物病害に対して全く予測出来ないような優れた防除効果を示すことがわかった。本発明の一般式 (1) で表されるチアゾールカルボン酸アミド誘導体は新規化合物であり、以下の反応式 (1) (化 5) に示した方法により製造される。

【0017】

【化 5】



【0018】(式中、X はハロゲン原子を示し、R は前記と同様である) すなわち、一般式 (3) で表されるチ

アゾールカルボン酸ハライドと 2-アミノビフェニルを、溶融状態または溶媒中で反応させることにより製造

できる。

【0019】本反応に使用される溶媒としては反応に不活性なものであればよく、例えば、ベンゼン、トルエン、クロロベンゼン等の芳香族類、ジオキサン、テトラヒドロフラン、ジエチルエーテル等のエーテル類、酢酸エチル等のエステル類、ジクロロメタン、クロロホルム、1, 2-ジクロロエタン等のハロゲン化炭化水素、ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド等の非プロトン性極性溶媒等があげられる。

【0020】本反応はまた塩基の存在下に行ってもよく、塩基として例えば、トリエチルアミン、ピリジン、N、N-ジメチルアニリン等の有機塩基、水素化ナトリウム、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸水素ナトリウム等の無機塩基があげられる。反応温度は0~150℃である。一般式(4)のカルボン酸ハライドは公知の方法で製造される。

【0021】本発明の一般式(1)で表される化合物を有効成分として含有する農薬用殺菌剤は、キュウリ、トマト、イチゴ、ブドウ等各種作物の灰色かび病、キュウリうどんこ病、大麦うどんこ病、小麦うどんこ病、イチゴうどんこ病、ブドウうどんこ病、リンゴうどんこ病、小麦赤さび病等に対し優れた防除効果を示す。

【0022】本発明に係わる一般式(1)で表される化合物を農薬用殺菌剤として使用する場合は、処理する植物に対して原体をそのまま使用してもよいが、一般には不活性な液体担体または固体担体と混合し、通常用いられる製剤形態である粉剤、水和剤、フロワブル剤、乳剤、粒剤およびその他の一般に慣用される形態の製剤として使用される。更に製剤上必要ならば補助剤を添加することもできる。

【0023】ここでいう担体とは、処理すべき部位への有効成分の到達を助け、また有効成分化合物の貯蔵、輸送、取扱いを容易にするために配合される合成または天然の無機または有機物質を意味する。担体としては、通常農薬用殺菌剤に使用されるものであるならば固体または液体のいずれでも使用でき、特定のものに限定されるものではない。

【0024】例えば、固体担体としては、モンモリロナイト、カオリナイト等の粘土類、珪藻土、白土、タルク、パーミキュライト、石膏、炭酸カルシウム、シリカゲル、硫酸等の無機物質、大豆粉、鰯屑、小麦粉等の植物性有機物質および尿素等があげられる。

【0025】液体担体としては、トルエン、キシレン、クメン等の芳香族炭化水素類、クロシン、鉱油などのパラフィン系炭化水素類、アセトン、メチルエチルケトンなどのケトン類、ジオキサン、ジエチレングリコールジメチルエーテルなどのエーテル類、メタノール、エタノール、プロパノール、エチレングリコールなどのアルコール類、ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド

および水等があげられる。

【0026】更に本発明化合物の効力を増強するために、製剤の剤型、適用場面等を考慮して目的に応じてそれぞれ単独に、または組み合わせて次の様な補助剤を使用することもできる。補助剤としては、通常農薬用殺菌剤に使用される界面活性剤、結合剤(例えば、リグニンスルホン酸、アルギン酸、ポリビニルアルコール、アラビアゴム、CMCナトリウム等)、安定剤(例えば、酸化防止用にフェノール系化合物、チオール系化合物または高級脂肪酸エステル等を用いたり、pH調整剤として燐酸塩を用いたり、時に光安定剤も用いる)等を必要に応じて単独または組み合わせて使用できる。更に場合によっては防菌防黴のために工業用殺菌剤、防菌防黴剤などを添加することもできる。

【0027】補助剤について更に詳しく述べる。乳化、分散、拡張、湿潤、結合、安定化等の目的ではリグニンスルホン酸塩、アルキルベンゼンスルホン酸塩、アルキル硫酸エステル塩、ポリオキシアルキレンアルキル硫酸塩、ポリオキシアルキレンアルキルリン酸エステル塩等のアニオン性界面活性剤、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル、ポリオキシアルキレンアルキルアリアルエーテル、ポリオキシアルキレンアルキルアミン、ポリオキシアルキレンアルキルアミド、ポリオキシアルキレンアルキルチオエーテル、ポリオキシアルキレン脂肪酸エステル、グリセリン脂肪酸エステル、ソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシアルキレンソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシプロピレンポリオキシエチレンブロックポリマー等の非イオン性界面活性剤、ステアリン酸カルシウム、ワックス等の滑剤、イソプロピルヒドロジエンホスフェート等の安定剤、その他メチルセルロース、カルボキシメチルセルロース、カゼイン、アラビアゴム等があげられる。しかし、これらの成分は以上のものに限定されるものではない。

【0028】本発明に係わる農薬用殺菌剤における一般式(1)で表される化合物の含有量は、製剤形態によっても異なるが、通常粉剤では0.05~20重量%、水和剤では0.1~80重量%、乳剤では1~50重量%、フロワブル製剤では1~50重量%、ドライフロワブル製剤では1~80重量%であり、好ましくは、粉剤では0.5~5重量%、水和剤では5~80重量%、粒剤では0.5~8重量%、乳剤では5~20重量%、フロワブル製剤では5~30重量%およびドライフロワブル製剤では5~50重量%である。

【0029】補助剤の含有量は0~80重量%であり、担体の含有量は、100重量%から有効成分化合物および補助剤の含有量を差し引いた量である。

【0030】本発明組成物の施用方法としては種子消毒、茎葉散布等が挙げられるが、通常当業者が利用するどの様な施用方法にても十分な効力を発揮する。施用量

および施用濃度は対象作物、対象病害、病害の発生程度、化合物の剤型、施用方法および各種環境条件等によって変動するが、散布する場合には有効成分量としてヘクタール当たり50~1,000gが適当であり、望ましくはヘクタール当たり100~500gである。また水和剤、フロワブル剤または乳剤を水で希釈して散布する場合、その希釈倍率は200~20,000倍が適当であり、望しくは1,000~5,000倍である。

【0031】本発明の農園芸用殺菌剤は他の殺菌剤、殺虫剤、除草剤および植物成長調節剤等の農薬、土壌改良剤または肥効物質との混合使用は勿論のこと、これらとの混合製剤も可能である。殺菌剤としては例えば、トリアジメホン、ヘキサコナゾール、プロクロラズ、トリフルミゾール等のアゾール系殺菌剤、メタラキシル、オキサディキシル等のアシルアラニン系殺菌剤、チオファネートメチル、ベノミル等のベンズイミダゾール系殺菌剤、マンゼブ等のジチオカーバメート系殺菌剤およびテトラクロロイソフタロニトリル、硫黄等があげられ、殺虫剤としては例えば、フェニトロチオン、ダイアジノン、ピリダフェンチオン、クロルピリホス、マラソン、フエントエート、ジメトエート、メチルチオメトン、プロチオホス、DDVP、アセフェート、サリチオン、EPN等リン系殺虫剤、NAC、MTMC、BPMC、ピリミカブ、カルボスルファン、メソミル等のカーバメート系殺虫剤およびエトフェンブロックス、ペルメトリン、フェンバレーレート等のピレスロイド系殺虫剤等があげられるが、これに限定されるものではない。

#### 【0032】

【実施例】次に実施例をあげて本発明化合物の製造法を具体的に説明する。

#### 実施例1

N-(2-フェニルフェニル)-2-メチル-4-トリフルオロメチルチアゾール-5-カルボン酸アミド(化合物1)の製造

2-メチル-4-トリフルオロメチルチアゾール-5-カルボン酸4gをトルエン50mlに懸濁させ、これに五塩化リン4.74gを装入し、3時間加熱還流してクロル化させ、減圧下に溶媒を留去した。析出物にテトラヒドロフラン30ml、ピリジン1.8gを装入し、室温で攪拌しながら2-アミノジフェニル3.56gを加え、2時間攪拌した。反応後、水に排出し、酢酸エチルで抽出後、有機層を2N-塩酸、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で各々洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥する。減圧下に溶媒を留去した、シリカゲルでカラムクロマトグラフィーにて精製して、目的物5.3gを得た(収率73%)。

m.p.:121.6~122.8°C

<sup>1</sup>H-NMR(CDCl<sub>3</sub>, δ値):2.70(3H, s), 7.22~7.51(m, 8H), 7.73(brs, 1H), 8.34(d, J=8.1, 1H),

IR(cm<sup>-1</sup>):3273, 1681, 1520, 1173, 755

#### 【0033】実施例2

N-(2-フェニルフェニル)-4-トリフルオロメチルチアゾール-5-カルボン酸アミド(化合物2)の製造

実施例1において、カルボン酸として4-トリフルオロメチルチアゾール-5-カルボン酸を用いた以外は全く同様の方法で目的物を得た(収率70%)。

m.p.:117~120°C

<sup>1</sup>H-NMR(CDCl<sub>3</sub>, δ値):7.25~7.32(m, 2H), 7.35~7.38(m, 2H), 7.41~7.45(m, 4H)

7.81(brs, 1H), 8.37(d, J=8.1, 1H), 8.81(s, 1H)

IR(cm<sup>-1</sup>):3242, 3070, 1651, 1548, 1510, 1190, 1132, 750

#### 【0034】参考例1

N-(2-フルオロフェニルフェニル)-2-メチル-4-トリフルオロメチルチアゾール-5-カルボン酸アミド(対照化合物A)

実施例1において、アミンとして2'-フルオロ-2-アミノジフェニルを用いた以外は全く同様の方法で行った。

m.p.:98.5~100.3°C

<sup>1</sup>H-NMR(CDCl<sub>3</sub>, δ値):2.76(s, 3H), 7.15~7.24(m, 2H), 7.30~7.77(m, 6H), 7.86(brs, 1H)

IR(cm<sup>-1</sup>):3293, 1657, 1601, 1556, 1359, 991, 758

#### 【0035】参考例2

N-(2-イソプロピルフェニル)-2-メチル-4-トリフルオロメチルチアゾール-5-カルボン酸アミド(対照化合物B)

実施例1において、アミンとして2-イソプロピルアニリンを用いた以外は全く同様の方法で行った。

m.p.:114.0~115.2°C

<sup>1</sup>H-NMR(CDCl<sub>3</sub>, δ値):1.25(d, J=6.6, 6H), 2.77(s, 3H), 3.04(septet, J=6.6, 1H)

7.24~7.27(m, 2H), 7.29~7.36(m, 1H), 7.58~7.69(m, 1H)

7.73(brs, 1H)

IR(cm<sup>-1</sup>):3205, 2968, 1649, 1561, 1527, 1173, 1131

#### 【0036】参考例3

N-(2-フェニルフェニル)-2,4-ジメチルチアゾール-5-カルボン酸アミド(対照化合物C)

実施例1において、カルボン酸として2,4-ジメチルチアゾール-5-カルボン酸を用いた以外は全く同様の方法で行った。

m.p.:132~133°C

<sup>1</sup>H-NMR(CDCl<sub>3</sub>, δ値):2.34(s, 3H), 2.62(s, 3H), 7.17~7.29(m, 3H), 7.37~7.77(m, 6H), 8.42(d, J=8.1, 1H)

IR(cm<sup>-1</sup>):3373, 1667, 1525, 1310, 1177, 755

#### 【0037】製剤例および生理試験例

次に本発明に係わる農園芸用殺菌剤の製剤例および試験例を示す。

#### 製剤例1 粉剤

50 化合物番号1の化合物3部、ケイソウ土20部、白土3

0部およびタルク47部を均一に粉碎混合して粉剤100部を得た。

【0038】製剤例2 水和剤

化合物番号2の化合物30部、ケイソウ土47部、白土20部、リグニンスルホン酸ナトリウム1部およびアルキルベンゼンスルホン酸ナトリウム2部を均一に粉碎混合して水和剤100部を得た。

【0039】製剤例3 乳剤

化合物番号1の化合物10部、シクロヘキサン10部、キシレン50部およびソルボール（東邦化学製界面活性剤）20部を均一に溶解混合し、乳剤100部を得た。

【0040】製剤例4 水和剤

化合物番号1の化合物50部、タルク40部、ラウリルリン酸ナトリウム5部およびアルキルナフタレンスルホン酸ナトリウム5部を混合し、水和剤100部を得た。

【0041】製剤例5 水和剤

化合物番号1の化合物50部、リグニンスルホン酸ナトリウム10部、アルキルナフタレンスルホン酸ナトリウム5部、ホホワイトカーボン10部およびケイソウ土25部を混合粉碎し、水和剤100部を得た。

【0042】製剤例6 フロワブル剤

化合物番号1の化合物40部、カルボキシメチルセルロース3部、リグニンスルホン酸ナトリウム2部、ジオクチルスルホサクシネートナトリウム塩1部および水54部をサンドグラインダーで湿式粉碎し、フロワブル剤100部を得た。

\*【0043】次に本発明化合物の農園芸用殺菌剤としての効力を試験例によって説明する。なお試験例においては、上記参考例の化合物を対照剤として用いた。

【0044】試験例1 インゲン灰色かび病防除効果試験

温室内で直径7.5cmのビニールポットに子葉の展開まで2本づつ生育させたインゲン（品種：つるなしトッブクロップ）に、製剤例5に準じて調製した水和剤を所定濃度に希釈して、4ポット当たり50mlづつ散布した。薬液が風乾した後、PDA培地上で培養した灰色かび病菌から調製した分生孢子懸濁液（ $1 \times 10^5$ 個/ml）を子葉上に噴霧接種し、20～23℃、湿度95%以上の温室に7日間保った。接種7日後、インゲン1葉当たりに灰色かび病の病斑が占める面積を次の指標に従って調査した。結果を第1表（表1）に示す。

【0045】発病度 0：発病なし

1：病斑の面積が5%以下

2：病斑の面積が5～25%

3：病斑の面積が25～50%

4：病斑の面積が50%以上

各処理区および無処理区の平均値を発病度とした

防除価（%）＝（1－処理区の発病度／無処理区の発病度）×100

【0046】

【表1】

第1表

化合物番号	有効成分濃度 (ppm)	防除価 (%)
本発明化合物 1	200	100
	50	100
本発明化合物 2	200	100
	50	100
対照化合物 A	200	42
	50	30
対照化合物 B	200	90
	50	65
対照化合物 C	200	35
	50	0

【0047】試験例2 キュウリうどんこ病防除効果試験

温室内で直径7.5cmのビニールポットに2本づつ生育させたキュウリ（品種：促成ニッポン）の第一葉期苗に、製剤例5に準じて調製した水和剤を所定濃度に希釈

して、4ポット当たり50mlづつ散布した。薬液が風乾した後、予めキュウリ葉上で発生させておいたキュウリうどんこ病菌胞子を軽く葉上に振り落としとして接種した。接種10日後、キュウリ1葉当たりにうどんこ病の病斑が占める面積を次の指標に従って調査した。結果を



第2表(表2)に示す。

【0048】発病度 0:発病なし

1:病斑の面積が5%以下

2:病斑の面積が5~25%

3:病斑の面積が25~50%

4:病斑の面積が50%以上

\*

第2表

化合物番号	有効成分濃度 (ppm)	防除価 (%)
本発明化合物 1	200	100
	50	100
本発明化合物 2	200	100
	50	75
対照化合物 A	200	38
	50	20
対照化合物 B	200	50**
	50	38*
対照化合物 C	200	50
	50	10

表中、+、~、+は葉害(白化)の程度を示す。無印は葉害なし。

【0050】試験例1および2の結果は、一般式(1)で表される本発明化合物が対照化合物に比べてキュウリ灰色かび病およびキュウリうどんこ病に対して優れた防除効果を示すとともに、作物に対しても安全であることを示している。この様な結果は前記先行技術からは全く予想できないものである。

\*各処理区および無処理区の平均値を発病度とした

防除価(%) = (1 - 処理区の発病度 / 無処理区の発病度) × 100

【0049】

【表2】

【0051】

【発明の効果】本発明の一般式(1)で表される化合物を有効成分として含有する農園芸用殺菌剤は、キュウリ、トマト、イチゴ、ブドウ等各種作物の灰色かび病、キュウリうどんこ病、大麦うどんこ病、小麦うどんこ病、イチゴうどんこ病、ブドウうどんこ病、リンゴうどんこ病、小麦赤さび病等に対し優れた防除効果を示し、農園芸用殺菌剤として有用である。

フロントページの続き

(72)発明者 柳瀬 勇次

千葉県茂原市東郷1144番地 三井東圧化学  
株式会社内

(72)発明者 貴志 淳郎

千葉県茂原市東郷1144番地 三井東圧化学  
株式会社内